11)

2

2

43

(9) BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



27 41 661 Offenlegungsschrift

Aktenzeichen:

P 27 41 661.1

Anmeldetag:

16. 9.77

Offenlegungstag:

22. 3.79

Unionspriorität: 30

33 33 31

(54) Bezeichnung: Verfahren zur Umkleidung von Abfallfässern mit einer

auslaugsicheren, geschlossenen Hülle

Anmelder: 1

Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH, 8000 München

0 Erfinder: Uerpmann, Ernst-Peter, Dipl.-Chem., 3360 Osterode

ţ

GESELLSCHAFT FÜR STRAHLEN- UND UMWELTFORSCHUNG MBH, MÜNCHEN

Neuherberg, den 6.9.1977 PLA 7754 Ga/jd

Patentansprüche:

- Verfahren zur Umkleidung radioaktiver, mit Bindemitteln zu verfestigende und in Abfallfässern unterzubringende Abfälle mit einer gegenüber Wasser und wäßrigen Lösungen natürlicher Salzminerale beständigen, auslaugsicheren geschlossenen Hülle, dadurch gekennzeichnet, daß auf dem Boden (9) in dem Abfallfaß (1) zuerst eine Bodenschicht (2) aus einem Kunstharz oder Abstandsmaterial aufgebracht wird, daß dann in dem Abfallfaß (1) eine Abstandsschicht (3) angeordnet wird, die den Raum des um den Abfall (4) anzubringenden seitlichen Anteils der Hülle (5) einnimmt, daß dann die Abfälle (4) mit den Bindemitteln in das Abfallfaß (1) bis zur oder bis unterhalb der Höhe der Abstandsschicht (3) eingefüllt und sich binden gelassen werden, und daß dann der Raum, der von dem Bodenabstandsmaterial (2), der seitlichen Abstandsschicht (3) und dem Anteil (10) über den Abfällen (4) mit den Bindemitteln eingenommen wird und von der Hülle (5) ersetzt werden soll, mit einem ein Lösungsmittel enthaltenden Kunstharz aufgefüllt wird, wobei das Lösungsmittel das Abstandsmaterial am Boden (9) und das Material der seitlichen Abstandsschicht (3) auflöst und der Kunstharz mit der Bodenschicht (2) eine feste und dichte mechanische Verbindung eingeht.
- 2. Verfahren zur Umkleidung radioaktiver, mit Bindemitteln zu verfestigende und in Abfallfässern unterzubringende Abfälle mit einer gegenüber Wasser und wässrigen Lösungen natürlicher Salzminerale beständigen, auslaugsicheren geschlossenen Hülle, dadurch gekennzeichnet, daß das Abfallfaß (1) mit einer bis zum oberen Rand (11) reichenden oder darüber hinausragenden Außenhülle (7, 8) umgeben wird, daß unter dem Boden (12) des Abfallfaßes (1) eine Bodenschicht (2) in der Außenhülle (7, 8) aus Kunstharz oder Abstandsmaterial aufgebracht wird, daß dann zwi-

- 2 -

909812/0453

schen dem Abfallfaß (1) und der Außenhülle (8) eine seitliche Abstandsschicht (3) angeordnet wird, die den Raum des um das Abfallfaß (1) anzubringenden seitlichen Anteils der Hülle (5) einnimmt, und daß dann der Raum, der von der Bodenschicht (2), der seitlichen Abstandsschicht (3) und einer Scheibe (10), die durch das Überragen der Außenhülle (8) über das Faß (1) entsteht, eingenommen wird und die Hülle (5) bilden soll, mit einem ein Lösungsmittel enthaltenden Kunstharz aufgefüllt wird, wobei das Lösungsmittel das Abstandsmaterial am Boden (7) und das Material der seitlichen Abstandsschicht (3) auflöst und der Kunstharz mit dem Kunstharz der Bodenschicht (2) eine feste und dichte mechanische Verbindung eingeht.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß der Kunstharz ein Polyesterharz oder ein Epoxydnarz ist, daß das Lösungsmittel Styrol ist und das Material der Bodenschicht (2) und der seitlichen Abstandsschicht (3) oder eines verformten Innenbehälters aus einem geschäumten Polystyrol besteht.

GESELLSCHAFT FÜR STRAHLEN- UND UMWELTFORSCHUNG MBH, MÜNCHEN

Neuherberg, den 6.9.1977 PLA 7754 Ga/jd

Verfahren zur Umkleidung von Abfallfässern mit einer auslaugsicheren, geschlossenen Hülle

- 1 -

Beschreibung:

4

Die Erfindung betrifft Verfahren zur Umkleidung radioaktiver, mit Bindemittel zu verfestigende und in Abfallfässern unterzubringende Abfälle mit einer gegenüber Wasser und wäßrigen Lösungen natürlicher Salzminerale beständigen, auslaugsicheren geschlossenen Hülle.

Die Auslaugbeständigkeit radioaktiver Abfälle gegenüber Wasser und wässrigen Lösungen natürlicher Salzminerale hat einen wichtigen Einfluß auf die Beurteilung der langfristigen Sicherheit der Endlagerung radioaktiver Abfälle in geologischen Endlagern oder anderen Lagerformen. Bislang wurde die Verfestigung radioaktiver · Abfälle gegen Wasser und wäßrige Lösungen durch Vermischen mit Bitumen oder hydraulischen Bindemitteln erreicht und diese radioaktiv kontaminierten Massen erstarrten anschließend in Blechfässern. Borathaltige flüssige Abfälle aus Kernkraftwerken werden an einigen Orten der Bundesrepublik Deutschland (Würgassen, Stade) unmittelbar in Fässern eingedampft und erstarren beim Abkühlen zu einem festen Salzblock, welcher wasserlöslich ist. Feste kontaminierte Abfälle aus Laboratorien, Landessammelstellen und Kernkraftwerken werden ohne weitere Behandlung in Fässer gegeben und gelangen zur Endlagerung. Solche Abfälle werden teilweise durch Pressen verdichtet.

Sogenannte verlorene Betonabschirmungen nehmen jeweils ein 200 Liter-Abfallfaß auf und begrenzen die Dosisleistung an der Oberfläche der Behälter auf die zulässigen Dosisleistungswerte. Diese Behälter können von Wasser und wäßrigen Salzlösungen benetzt werden. Der Beton weist außerdem Poren auf, in welche Wasser und gelöste Salze eindringen können. Dadurch kann eine Zerstörung des Betons und eine Auslaugung der Radioaktivität stattfinden.

- 4 -

In allen diesen Fällen sind die radioaktiven Abfülle einer Einwirkung von Wasser oder wäßrigen Lösungen im Falle des als größten anzunehmenden Unfalls für das Endlager angesehenen hypothetischen Wassereinbruchs unmittelbar ausgesetzt. Diese Einwirkung kann zu einer teilweisen Auslaugung der in den Fässern enthaltenen Radioaktivität führen. Damit ist die Möglichkeit gegeben, daß sich Radioaktivität in dem mit Wasser vollgelaufenen Grubengebäude weiter ausbreiten kann und u.U. einen Weg in Grundwasser führende Deckschichten findet. Neben der Auslaugung kann ein chemischer Angriff vor allem auf die mit hydraulischen Bindemitteln verfestigten Abfälle stattfinden. Das Klinkermineral Tricalciumaluminat (im Zement vorhanden) setzt sich mit den Sulfationen der wäßrigen Lösungen zu Tricalciumaluminatsulfat (Ettringit) um. Dabei wird infolge des Kristallisationsdruckes das Gefüge des Bindemittels zerstört und es kann eine Krümelmasse entstehen. Infolge der starken Oberflächenvergrößerung des radioaktiven Abfalls steigt auch der Anteil der ausgelaugten Aktivität. Im Falle der eingedampften Lösungen borathaltiger Abfälle oder der kompaktierten oder nicht kompaktierten Festabfälle kann es zu einer Auflösung oder Auswaschung des gesamten radioaktiven Inhalts kommen.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, Verfahren zu bieten, mit denen die Beständigkeit der radioaktiven, mit Bindemitteln verfestigten Abfälle bzw. die Abfallbehälter selbst gegen Wasser oder wäßrige Salzlösungen durch Erzeugung eines geschlossenen Mantels aus inaktivem, wasserabstoßenden und wasserundurchlässigen porendichten Material gewährleistet werden kann.

Die Lösung sieht bei einem ersten Verfahren derart aus, daß auf dem Boden in dem Abfallfaß zuerst eine Bodenschicht aus einem Kunstharz oder Abstandsmaterial aufgebracht wird, daß dann in dem Abfallfaß eine seitliche Abstandsschicht oder ein vorgeformter Innenbehälter angeordnet wird, die den Raum des um den Abfall anzubringenden seitlichen Anteils der Hülle einnehmen, daß dann die Abfälle mit den Bindemitteln in das Abfallfaß bis zur oder bis unterhalb der Höhe der seitlichen Abstandsschicht eingefüllt und sich binden gelassen werden, und daß dann der Raum, der von dem

- 5 - 909812/04**53**

Bodenabstandsmaterial, der seitlichen Abstandsschicht und dem Anteil über den Abfällen mit den Bindemitteln eingenommen wird und von der Hülle ersetzt werden soll, mit einem ein Lösungs-mittel enthaltenden Kunstharz aufgefüllt wird, wobei das Lösungs-mittel das Abstandsmaterial am Boden und das Material der seitlichen Abstandsschicht auflöst und der Kunstharz mit der Bodenschicht aus Kunstharz eine feste und dichte mechanische Verbindung eingeht.

Eine andere Lösung dieser Aufgabe sieht vor, daß das Abfallfaß mit einer bis zum oberen Rand reichenden oder darüber hinausragenden Außenhülle umgeben wird, daß unter dem Boden des Abfallfasses eine Bodenschicht aus Kunstharz oder Abstandsmaterial in der Außenhülle aufgebracht wird, daß dann zwischen dem Abfallfaß und der Außenhülle eine seitliche Abstandsschicht angeordnet wird, die den Raum des um das Abfallfaß anzubringenden seitlichen Anteils der Hülle einnimmt, und daß dann der Raum, der von der Bodenschicht, der seitlichen Abstandsschicht und einer Scneibe, die durch das Überragen der Außenhülle über dem Faß entsteht, eingenommen wird und die Hülle bilden soll, mit einem ein Lösungsmittel enthaltenden Kunstharz aufgefüllt wird, wobei das Lösungsmittel das Abstandsmaterial am Boden und das Material der seitlichen Abstandsschicht auflöst und der Kunstharz mit der Bodenschicht aus Kunstharz eine feste und dichte mechanische Verbindung eingeht.

Als besonders vorteilhaft zur Ausführung der o.g. erfindungsgemäßen Verfahren hat sich erwiesen die Verwendung von Polyesterharz oder Epoxydharz als Kunstharz, Styrol als Lösungsmittel und geschäumtes Polystyrol als Material für die Bodenschicht und die seitliche Abstandsschicht oder den vorgeformten Innenbehälter. Ebenso können die Fäßer auf Kunstharzklötze als Distanzstücke gestellt werden.

Die besonderen Vorteile der erfindungsgemäßen Lösungen liegen in der Einführung einer bislang nicht vorhandenen inaktiven Schicht eines wasserundurchlässigen und wasserabstoßenden Materials, welches in ausreichender Dicke dafür sorgt, daß Wasser oder wäßrige Lösungen natürlicher Minerale mit den in geologischen Formationen zur Endlagerung kommenden radioaktiven Abfällen nicht in eine

- 6 - 909812/04**53**

2741661

unmittelbare Berührung kommen und somit eine Auslaugung, evtl. chemische Zersetzung des Bindemittels und Verbreitung radioaktiver Materialien sicher vermindert, wenn nicht sogar bis zu einem Zerfall dieser Abfälle auf ungefährliche Werte völlig verhindert werden kann. Durch die Erfindung und insbesondere ihre leichte technologische Verwirklichung lassen sich große Vorteile bei der Sicherheit der Endlagerung radioaktiver Abfälle aber auch chemischer Abfälle in geologischen Formationen oder anderen Lagermethoden bei entsprechender Berücksichtigung der Wechselwirkung von Abfallprodukt, Verpackungsmaterial, inaktiver wasserdichter Sperrschicht und Lagermedium erzielen. Eine Auslaugung und Verbreitung radioaktiver oder sonstiger gefährlicher Abfälle wird entscheidend vermindert.

Die Erfindung wird im folgenden anhand zweier Ausführungsbeispiele mittels der Figuren 1a bis d und 2a bis d näher erläutert.

Die Figuren 1a bis d zeigen vier Verfahrensschritte, bei denen radioaktive Abfülle 4, gebunden in Zement oder Gips, in ein Abfallfaß 1 aus z.B. Metall eingebracht werden sollen. Der Boden 9 des leeren Abfallfasses 1 (siehe Fig. 1a) wird mit einem Kunstharz 2 in ausreichender Dicke von ca. 1 bis 2 cm bedeckt. Anstelle dieser Schicht 2 aus Kunstharz kann auch eine Bodenabstandsschicht aus geschäumtem Polystyrol verwendet werden, wenn die Abfälle 4 (und das gilt auch für das zweite Ausführungsbeispiel) leichter als flüssiger Kunstharz sind. Nach dem Aushärten des Polyesterharzes der Schicht 2 wird die Innenwandung 13 des leeren Fasses 1 mit einer etwa 1 bis 2 cm starken seitlichen Abstandsschicht 3 (siehe Fig. 1b) von geschäumtem Polystyrol ausgekleidet. Daneben könnte über diese Schicht 2 aus Kunstharz nach dem Aushärten ein vorgeformter Behältermit Boden aus geschäumtem Polystyrol eingesetzt werden. Dieses Material bzw. diese Abstandsschicht 3 soll die Offenhaltung eines Ringraumes nach dem Erstarren der breiförmig eingebrachten Abfülle 4 gewährleisten. Nach dem Abbinden und Aushärten des mit hydraulischen Bindemitteln versetzten radioaktiven Abfalls 4 (siehe Fig. 1c), wobei die seitliche Abstandsschicht 3 etwas über die Oberfläche 14 des Abfalls 4 hinausragt oder bis zu ihr hinreicht und einen oberen Raumanteil 10 bildet, wird das geschäumte Polystyrol der Abstandsschicht 3 und evtl. der Bodenschicht 2 mit Polyester 6 überschüttet (siehe Fig. 1d). Das Styrol als Lösungsmittel enthaltende

909812/0453

Polyesterharz 6 ist in der Lage, das als Distanzmaterial eingesetzte, geschäumte Polystyrol der Schicht 3 aufzulösen. Dieser Vorgang wird erreicht, wenn zum einen die Topfzeit des Harzes durch Härterzugabe und Temperatur so geregelt wird, daß alles Polystyrol gelöst wird und zum anderen erleichtert, wenn an der Außenseite durch offene senkrechte Kanäle (nicht näher dargestellt) zwischen geschäumtem Polystyrol (Schicht 3) und Behälterwand 13 das Vordringen des flüssigen Harzes möglich ist. Nach dem Aushärten des Polyesterharzes ist der mit hydraulischen Bindemitteln verfestigte radioaktive Abfall 4 an jeder Stelle von einer 1 bis 2 cm starken, inaktiven, die Teilräume 2, 3 und 10 ausfüllenden Hülle 5 aus Polyesterharz umgeben. Bestand die Schicht 2 bereits aus kalthärtendem Kunstharz, so geht dieser eine feste, dichte mechanische Verbindung mit dem eingefüllten Kunstharz 6 ein, der den Platz der seitlichen Abstützung 3 bzw. den Raum 10 oberhalb der Abfälle 4 einnimmt. Ein evtl. noch verbleibender Resthohlraum bis zu einem nicht näher dargestellten Faßdeckel kann z.B. dann mit inaktivem Beton verfüllt werden. Zur Verbesserung der mechanischen Eigenschaften der Kunstharzumhüllung können dem flüssigen Harz Glasfasern zugegeben werden.

Beim Umgeben eines Abfallfasses 1 selbst mittels einer allseitig dichten Hülle 5 kann gemäß den Verfahrensschritten, wie sie in den Figuren 2a bis 2d schematisch aufgezeigt sind, vorgegangen werden. In Fig. 2a ist das geschlossene Faß 1 auf eine Bodenabstandsschicht 2 aus bereits ausgehärtetem Kunstharz oder Epoxydharz aufgestellt, wobei diese Schicht 2 selbst wiederum auf dem Boden 17 einer Außenhülle 7, 8, z.B. einer Betonabschirmung, aufgebracht ist. Der Zwischenraum zwischen der Außenhülle 8 und den Seitenwandungen des Fasses 1 wird gemäß Fig. 2b mit der Abstandsschicht 3 aus geschäumten Polystyrol ausgefüllt, wobei diese Abstandsschicht 3 über den Deckel 11 des Fasses 1 etwas hinausragt und dort einen freien Raum 10 bildet. Anschließend wird gemäß Fig. 2c Polyesterharz 6, welcher Styrol als Lösungsmittel enthält, über dem Faß 1 eingefüllt und zwar bis zur Stirnseite 15 der seitlichen Abschirmung 3 oder darüber hinaus bzw. bis zur Stirnseite

16 der Außenhülle 8. Dieses Polyesterharz löst das geschäumte Polystyrol der seitlichen Abstandsschicht 3 auf bzw. verbindet sich mit der Bodenschicht 2 aus bereits ausgehärtetem Kunstharz zu einer festen und dichten mechanischen Verbindung. Die Bodenschicht 2, der Raum, der von der seitlichen Abstandshalterung 3 eingenommen war und jetzt mit Polyesterharz ausgefüllt ist und der Raum 10 über dem Deckel 11 bilden alsdann nach dem Aushärten des zugefügten Polyesterharzes 6 und Auflösen der seitlichen Abstandsschicht 3 die allseitig geschlossene Hülle 5 um das Faß 1.

Ebenfalls läßt sich ein Abfallfaß in eine Außenhülle, z.B. eine verlorene Betonabschirmung, auf mehrere Distanzstücke aus z.B. Kunstharz stellen und durch seitlich angebrachte Distanzstücke zentrieren. Nach Übergießen mit einem kalthärtenden Kunstharz bildet sich die allseitig geschlossene Hülle 5 um das Faß 1.

- 0 -

10 Leerseite

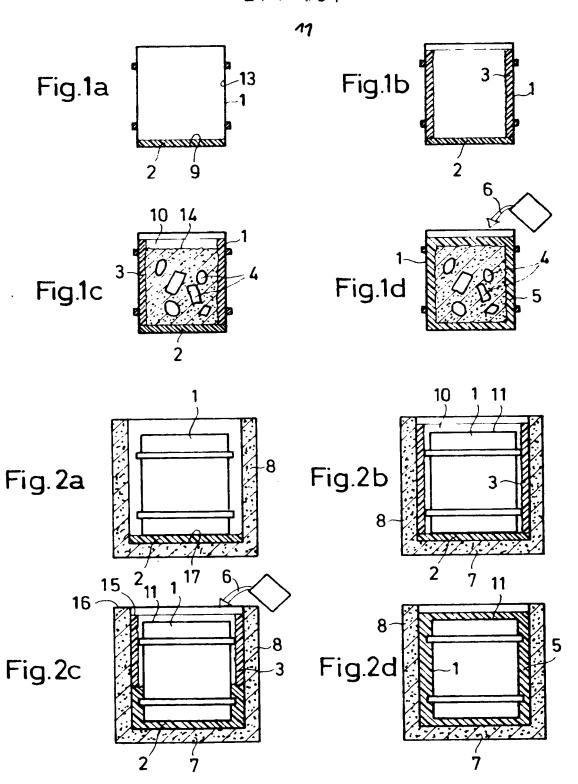
Nummer: int. Cl.²:

27 41 661 G 21 F 9/34

Anmeldetag: Offenlegungstag: 16. September 1977

22. März 1979

2741561



909812/0453